

トポロジカル絶縁体薄膜の構造物性

白澤 徹郎 〈東京大学物性研究所, 科学技術振興機構さきがけ〉

高橋 敏男 〈東京大学物性研究所〉

近年注目を集めているトポロジカル絶縁体は、バルク内部はバンドギャップを持つ絶縁体であるが表面にギャップレス状態を持つ。従来のバンド絶縁体においても表面の特異性によって表面に金属状態が現れる例がいくつも知られているが、トポロジカル絶縁体の表面状態はバルクの波動関数から計算されるトポロジカル数によって規定され、表面を切り出すことで必然的に現れる。しかも従来の表面状態が不純物等によって容易に破綻するのに対して、トポロジカル表面状態は時間反転対称性という自然界の基本的な要請によって摂動から守られる。このような著しい特徴のために新しい量子相として迎えられ、新奇物性の発現やデバイス応用が期待されている。

トポロジカル絶縁体の3次元物質が最初に報告されたのは2008年であり、これまでに薄膜を含む30を超す物質が見つかった。一方、物質探索の新しい切り口として、非トポロジカル物質を低次元化や格子圧縮などによってトポロジカル物質に相転移させる方法や、ドーピングによって超伝導や強磁性を持たせる方法が試されている。本稿ではこれらに関連する話題として、薄膜化によってトポロジカル半金属に相転移するBi薄膜と、トポロジカル超伝導体として注目されているCuドーピングBi₂Se₃の薄膜について、X線CTR (Crystal Truncation Rod) 散乱法を用いた原子レベル表界面構造解析から明らかになった構造物性について報告する。

Bi₂Te₃上に成長させたBi薄膜の電子状態はバルクBiと異なることが平原らによって示され、第一原理計算によってトポロジカル相転移していることが提案された。

我々は表界面を含むBi薄膜中全ての原子位置を決定して内部歪みが第一原理計算で予想された値と一致することを示し、エピタキシャル格子歪みが相転移の駆動力になっていることを証明した。

一方、トポロジカル絶縁体Bi₂Se₃にCuをドーピングした結晶は4K以下で超伝導転移することが知られており、トポロジカル超伝導体の候補物質として注目されている。CuがBi₂Se₃層間に挿入されて電子ドーピングすることで超伝導体になることが広く受け入れられてきたが、高温合成したバルク結晶は不均一性が大きく様々な副相を含むことが知られている。我々はBi₂Se₃薄膜に室温でCuをドーピングすることで、副相の形成を抑えつつインターカレーション構造ができることを確認した。しかし十分な電子ドーピングが有りながら0.8Kまで超伝導転移しないことが分かった。この結果はインターカレーション構造が超伝導の起源であるという仮説に疑問を投じる。

これらの結果はX線CTR散乱法の直接的構造解析に基づいている。伝統的には適切な構造モデルを試行錯誤的に見つけ出して最小二乗法で精密化する方法が用いられているが、我々は、ホログラフィ法を用いて未知構造部分を直接的にイメージングし、これを初期構造として反復位相回復法で薄膜中全ての原子層を再生することで、実験データから直接的に薄膜及び表界面層全ての構造パラメータを得ることに成功している。薄膜表界面のような多数の原子を取り扱う際に曖昧さのない解析法として、表界面が舞台となる分野でのさらなる活躍が期待される。

—Keywords—

X線CTR (Crystal Truncation Rod) 散乱:

その名の通り、結晶が表面で打ち切られることで現れる表面に垂直なロッド状の強度分布を持つX線散乱をいう(下図)。表面のある結晶の電子密度を表すには、結晶内部の電子密度と表面でのステップ関数の掛け算になる。X線散乱分布は、このフーリエ変換であるので、結晶内部の電子密度のフーリエ変換、すなわちデルタ関数(Braggピーク)と、ステップ関数のフーリエ変換である減衰関数 i/Q_z の畳み込みとなる(Q_z は散乱ベクトルの表面垂直方向の成分)。X線散乱強度は、Braggピークの位置から ΔQ_z だけずれると $1/(\Delta Q_z)^2$ に従って減衰する。表面構造によってステップ関数の形(電子密度の打ち切り方)が微妙に違うので、ロッドに沿ったCTR散乱強度分布を解析することによって原子レベルの表面構造が分かる。表面上に薄膜があるときには薄膜からの散乱との干渉波となり、薄膜及び界面構造を解析できる。

